

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**



DE 197 00 499 A 1

①9 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 197 00 499 A 1**

⑤1 Int. Cl.⁶:
B 01 L 7/00
G 01 N 1/02
G 01 N 22/00
B 01 F 13/08
H 05 B 6/80
H 05 B 6/76

⑦1 Aktenzeichen: 197 00 499.7
⑦2 Anmeldetag: 9. 1. 97
⑦3 Offenlegungstag: 25. 6. 98

⑥6 Innere Priorität:
196 54 170. 0 23. 12. 96

⑦1 Anmelder:
Mikrowellen-Systeme MWS GmbH, Küblis, CH

⑦4 Vertreter:
Mitscherlich & Partner, Patent- und Rechtsanwälte,
80331 München

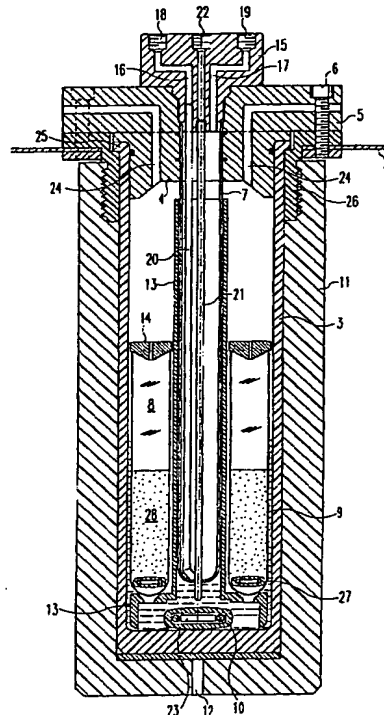
⑦2 Erfinder:
Lautenschläger, Werner, 88299 Leutkirch, DE

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

⑤4 Vorrichtung und Verfahren zum Behandeln chemischer Substanzen durch Erhitzen

⑤7 Um einen hohen Probendurchsatz mit einfachen und kostengünstigen Mitteln zu erreichen, wird eine Vorrichtung zum Behandeln chemischer Substanzen durch Erhitzen unter Druck mit einem Mikrowellen-undurchlässigen Gehäuse (1), einer mit dem Innenraum (2) des Gehäuses (1) verbundenen Mikrowellenquelle (29), mindestens einem zur Aufnahme der chemischen Substanzen oder Proben (28) dienenden Probenbehälter (8), vorgeschlagen, bei dem der oder die Probenbehälter (8) druckdurchlässig verschließbar ist/sind, und bei dem der oder die Probenbehälter (8) in einem druckfest verschließbaren Aufnahmebehälter (3) aus Mikrowellen-durchlässigem Material angeordnet ist/sind.

Weiter wird ein Verfahren zum Behandeln chemischer Substanzen durch Erhitzen vorgeschlagen, bei dem ein Kühlfinger (7), der zur Kühlung der in den Probenbehältern (8) befindlichen Proben (28) mit den Probenbehältern (8) in thermischem Kontakt steht, vor der Erhitzung der Proben (28) entleert, d. h. ein in dem Kühlfinger (7) evtl. vorhandenes Kühlmittel (35) entfernt wird, um die Wärmekapazität der Anordnung zu verringern, und bei dem nach erfolgter Reaktion in den Probenbehältern (8) ein Kühlmittel (34, 35) in bzw. durch den Kühlfinger (7) geleitet wird, um die Proben (28) schnell abzukühlen.



DE 197 00 499 A 1

Die Erfindung betrifft eine Vorrichtung zum Behandeln chemischer Substanzen durch Erhitzen unter Druck nach dem Oberbegriff von Patentanspruch 1 und ein Verfahren zum Behandeln chemischer Substanzen durch Erhitzen nach dem Oberbegriff von Patentanspruch 13.

Für den Ablauf, das Beschleunigen oder das Initiieren chemischer Reaktionen, Aufschlüsse, Extraktionen und dergleichen von Proben bzw. chemischen Substanzen werden häufig erhöhte Temperaturen benötigt. Zu diesem Zweck werden die Proben beispielsweise in mikrowellen-durchlässigen Probenbehältern in einem Mikrowellenofen mit mikrowellen-undurchlässigem Gehäuse angeordnet und durch Bestrahlung mit Mikrowellen erhitzt. Da bei den stattfindenden Reaktionen häufig hohe Drücke entstehen oder die Reaktionen nur unter hohen Drücken ablaufen, müssen die Probenbehälter druckfest und beispielsweise durch einen Deckel druckfest verschließbar sein. Im allgemeinen sind die Probenbehälter zusätzlich mit Überwachungsvorrichtungen wie Thermosensoren und/oder Drucksensoren ausgestattet, um den Ablauf der in den Behältern ablaufenden Reaktionen überwachen zu können.

Eine solche Vorrichtung ist beispielsweise aus der deutschen Patentanmeldung DE 40 18 955 des Anmelders bekannt. Darin wird u. a. ein Mikrowellenofen zum Erhitzen von Probenmaterial mit mehreren drucksicheren Probenbehältern vorgeschlagen, wobei die mehreren Probenbehälter auf einem drehbaren Tragteil mit entsprechenden Standplätzen für die Probenbehälter angeordnet sind. Auf diese Weise können mehrere Proben gleichzeitig behandelt und dadurch ein höherer Probendurchsatz erreicht werden, allerdings werden dazu mehrere drucksichere Probenbehälter benötigt, die je nach Ausführung sehr aufwendig und damit teuer sein können.

Nach erfolgter Reaktion oder auch während des Reaktionsablaufs zur Verhinderung einer möglichen Überhitzung der Probe müssen die Proben zumeist gekühlt werden. Kühlvorrichtungen zu diesem Zweck sind bereits aus der Praxis bekannt. Dabei kann man zwischen Kühlvorrichtungen innerhalb der Probenbehälter und außerhalb der Probenbehälter unterscheiden. Das heißt entweder taucht die Kühlvorrichtung direkt in die abzukühlende Probe ein oder steht in thermischen Kontakt mit der Außenseite der Probenbehälter.

Eine solche Vorrichtung mit einer in die Probe eintauchenden Wärmeaustauschvorrichtung ist beispielsweise in der internationalen Patentanmeldung PCT/AU94/00659 offenbart. Der dargestellte druckfeste Reaktionsbehälter dient zur Durchführung chemischer Reaktionen unter dem Einfluß von Mikrowellenstrahlung und weist einen druckfesten Deckel mit einer Überwachungsvorrichtung und einer Wärmeaustauschvorrichtung zum Eintauchen in den Behälterinhalt auf.

Weiter werden in der genannten internationalen Patentanmeldung verschiedene Verfahren zum Durchführen einer chemischen Reaktion mittels Zufuhr von Mikrowellenenergie vorgeschlagen. Je nach den Eigenschaften der zu behandelnden Behälterinhalte dient die Wärmeaustauschvorrichtung im Reaktionsbehälter dem Erwärmen und/oder dem Abkühlen der Behälterinhalte.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, eine Vorrichtung und ein Verfahren der eingangs genannten Art vorzusehen, die einen hohen Durchsatz von Probenmaterial mit einer einfachen und somit kostengünstigen Konstruktion bzw. einfachen Verfahrensschritten erlauben.

Diese Aufgabe wird gemäß einem ersten Aspekt der Erfindung durch eine Vorrichtung nach Patentanspruch 1 ge-

löst. Die erfindungsgemäße Vorrichtung weist einen großen druckfesten Aufnahmebehälter auf, in dem ein oder mehrere Probenbehälter von relativ einfacher, nicht notwendigerweise druckfester Konstruktion angeordnet werden kann bzw. können. Durch die gleichzeitige Behandlung mehrerer Proben und durch die Anordnung der einfachen Probenbehälter in einem äußeren druckfesten Behälter können beispielsweise kostengünstige Reagenzgläser eingesetzt und gleichzeitig ein hoher Probendurchsatz erreicht werden. Der Verschluß des bzw. der Probenbehälter soll einerseits einen Druckausgleich zwischen den Innenräumen des Probenbehälters bzw. der Probenbehälter und dem Innenraum des Aufnahmebehälters zulassen, andererseits aber einen Eintritt von chemischen Substanzen in der Gasphase von einem Probenbehälter in den anderen weitgehend ausschließen.

Zweckmäßigerweise wird der Aufnahmebehälter von oben durch eine Öffnung in das Gehäuse des Mikrowellenofens eingeführt, wobei die Verschlußvorrichtung des Aufnahmebehälters zur Befestigung an der Gehäusedecke des Mikrowellenofens, zur Mikrowellenabdichtung der Öffnung im Gehäuse des Mikrowellenofens und zum druckfesten Verschließen des Aufnahmebehälters dient. Ferner sollte die Verschlußvorrichtung aus Metallflansch und druckfestem Deckelteil für die Entnahme der Probenbehälter leicht von dem Aufnahmebehälter zu lösen sein. Dies ist insbesondere im Hinblick auf eine Automatisierung dieses Vorganges vorteilhaft.

Ferner kann der Kühlfinger eine Zuleitung und eine Ableitung für ein Kühlmittel aufweisen, wobei die Kühlmittelzuleitung mit einer Umschaltvorrichtung ausgestattet ist, so daß durch den Kühlfinger auf einfache Weise verschiedene Kühlmittel, wie beispielsweise Gase oder hochsiedende Kühlflüssigkeiten, geleitet werden können.

Weiter wird gemäß einer Weiterbildung der erfindungsgemäßen Vorrichtung eine mittels Mikrowellenbestrahlung direkt oder indirekt zu erhaltende Flüssigkeit im Aufnahmebehälter und evt. zusätzlich die Proben in den Probenbehältern mittels einem Rührelement gerührt. Durch die Rührung wird eine gleichmäßige Temperaturverteilung in der Flüssigkeit bzw. in den Proben erreicht. Das Rührelement enthält vorteilhafterweise einen stabförmigen Permanentmagneten, der durch eine drehbare Anordnung aus einem oder mehreren zweiten Magneten angetrieben wird.

Gemäß einer Weiterbildung der vorliegenden Erfindung liegt der metallische Kühlfinger der erfindungsgemäßen Vorrichtung auf dem gleichen elektrischen Potential wie das Gehäuse des Mikrowellenofens. Dadurch werden die einfallenden Mikrowellen an dem Kühlfinger reflektiert und passieren somit zweimal die Proben bzw. die Flüssigkeit, wodurch die Erhitzung durch Mikrowellenbestrahlung gefördert wird, d. h. es werden kürzere Aufwärmzeiten und/oder niedrigere Mikrowellenenergien benötigt.

Weiter werden gemäß einer Weiterbildung der vorliegenden Erfindung die Zuleitungsdrähte des Thermosensors, der eine von der Temperatur im Aufnahmebehälter abhängige Spannung erzeugt, durch ein metallisches Rohr im Inneren des Kühlfingers nach oben aus dem Mikrowellenraum herausgeführt, wobei das Rohr auf dem gleichen elektrischen Potential liegt wie das Gehäuse des Mikrowellenofens und der Kühlfinger. Dadurch wird die Temperaturmessung weder durch einfallende Mikrowellenbestrahlung noch durch eine Erwärmung der Zuleitungsdrähte verfälscht, d. h. es ist eine exaktere Messung der Temperatur möglich.

Gemäß einem zweiten Aspekt der vorliegenden Erfindung wird die obige Aufgabe durch ein Verfahren nach Patentanspruch 13 gelöst. Durch das Entleeren des Kühlfingers vor dem Erhitzungsprozeß wird die Wärmekapazität der Anordnung im Aufnahmebehälter stark reduziert, was zu ei-

ner schnelleren Erhitzung der Proben bzw. der Flüssigkeit und damit zu einem höheren Probendurchsatz führt. Außerdem werden durch diese Maßnahme Meßfehler an einem durch den Kühlfinger hindurchgeführten Thermosensor durch Verringerung des Wärmegradienten vermindert.

Zweckmäßigerweise wird der Kühlfinger vor und während des Heizvorganges mit einem Gas gespült und erst zum Abkühlen, beispielsweise nach dem Heizvorgang, zunächst mit einem höheren Gasstrom vorgekühlt und danach mit einer hochsiedenden Kühlflüssigkeit abgekühlt, um die Proben schneller entnehmen zu können. Bei sehr hohen Temperaturunterschieden ist es vorteilhaft mit einem erhöhten Gasfluß vorzukühlen, um eine Druckbelastung im Inneren des Kühlfingers durch extreme Dampfbildung zu vermeiden bzw. zu reduzieren.

Ferner wird gemäß einer Weiterbildung des erfindungsgemäßen Verfahrens der Siedepunkt der Flüssigkeit und der Proben durch Druckbeaufschlagung erhöht. Der höhere Siedepunkt verhindert Verschleppungsfehler zwischen den einzelnen Proben und der Flüssigkeit über die Gasphase, so daß unverfälschte chemische Reaktionen und eine höhere Reinheit der chemischen Reaktionsprodukte in den Probenbehältern erreicht werden kann.

Weitere Ausgestaltungen und Weiterbildungen der Erfindung sind Gegenstand von Unteransprüchen.

Die vorliegende Erfindung wird im folgenden anhand eines bevorzugten Ausführungsbeispiels unter Zuhilfenahme der beiliegenden Zeichnungen näher beschrieben. Darin zeigen:

Fig. 1 eine erfindungsgemäße Vorrichtung in vereinfachter Darstellung im Schnitt;

Fig. 2 die in der Vorrichtung von **Fig. 1** verwendeten erfindungsgemäße Anordnung aus Aufnahmebehälter, Flansch und Kühlfinger in vergrößerter Darstellung im Schnitt; und

Fig. 3 die erfindungsgemäße Anordnung von **Fig. 2** in vereinfachter Darstellung zur Erläuterung des erfindungsgemäßen Verfahrens.

In **Fig. 1** ist eine erfindungsgemäße Vorrichtung zum Behandeln chemischer Substanzen durch Erhitzen unter Druck dargestellt. Die Vorrichtung weist einen Mikrowellenofen mit einem mikrowellen-undurchlässigen Gehäuse **1** und eine mit dem Innenraum **2** des Gehäuses **1** verbundene Mikrowellenquelle **29**, sowie eine Elektroniksteuerung **30** der Mikrowellenquelle **29** und der Versorgungs- und Meßeinrichtungen der Vorrichtung auf. Das Gehäuse **1** besteht vorzugsweise aus Metall.

In der Decke des Mikrowellenofens **1** ist eine Öffnung **31** vorgesehen, in die ein Aufnahmebehälter **3** aus mikrowellen-durchlässigem Material, vorzugsweise aus PTFE, in den Innenraum **2** des Mikrowellenofens **1** eingeführt ist. Der Aufnahmebehälter **3** ist durch ein Deckelteil **4** druckfest verschließbar und mit einem Metallflansch **5** verbunden. Der Flansch **5** wird mittels mehrerer Schrauben **6** mit dem metallischen Gehäuse **1** des Mikrowellenofens verschraubt.

Metallflansch **5** und Deckelteil **4** bilden dabei eine Einheit, so daß sie gemeinsam mit dem Aufnahmebehälter **3** verbunden bzw. gemeinsam vom Aufnahmebehälter **3** entfernt werden können. Die Verschlussvorrichtung aus Metallflansch **5** und Deckelteil **4** erfüllt dabei insbesondere drei Aufgaben: erstens dient der Flansch **5** der Befestigung des Aufnahmebehälters **3** an der Decke des Mikrowellengehäuses, zweitens schließt der Metallflansch **5** die Öffnung **31** in der Decke des Mikrowellengehäuses **1** mikrowellendicht ab, da er zusammen mit dem Gehäuse **1** des Mikrowellenofens einen Faraday'schen Käfig bildet, und drittens wird der Aufnahmebehälter **3** durch das Deckelteil **4** druckfest verschlossen.

An der Unterseite des Metallflansches **5** ist zentrisch ein ebenfalls metallischer Kühlfinger **7** angebracht, der nach unten in den Aufnahmebehälter **3** hineinragt. Mittels eines durch den Kühlfinger **7** strömenden Kühlmittels kann der Inhalt des Aufnahmebehälters **3** gekühlt werden.

Der Aufnahmebehälter **3** kann mehrere Probenbehälter **8** aufnehmen, die vorzugsweise aus mikrowellen-durchlässigem Material bestehen und nicht druckfest zu sein brauchen. Die Probenbehälter **8** stehen in einer Flüssigkeit **9**, die durch Bestrahlung mit Mikrowellen direkt oder indirekt erhitzt wird. Die Flüssigkeit **9**, beispielsweise Wasser, gibt die Wärme an die Probenbehälter **8** und die darin enthaltenen chemischen Substanzen **28** ab. Damit die Flüssigkeit **9** und damit auch die Proben **28** in den Probenbehältern **8** gleichmäßig erhitzt werden, befindet sich unten im Aufnahmebehälter **3** ein magnetisches Rührelement **10**, das, wie weiter unten näher beschrieben, von einem magnetischen Rührantrieb **12** angetrieben wird und die Flüssigkeit **9** zum Zwecke einer gleichmäßigen Temperaturverteilung in der Flüssigkeit **9** durchmischt.

Mit der obigen Anordnung können insbesondere chemische Substanzen **28**, die keine Mikrowellenstrahlung absorbieren, behandelt werden, da sie indirekt über die Flüssigkeit **9** erwärmt werden. Selbstverständlich kann die erfindungsgemäße Vorrichtung aber auch für mikrowellen-absorbierende Substanzen **28** verwendet werden, welche direkt durch die Bestrahlung mit Mikrowellen und zugleich indirekt durch die erwärmte Flüssigkeit **9** erhitzt werden. Die Probenbehälter **8** müssen in diesem Fall notwendigerweise aus einem mikrowellen-durchlässigem Material sein.

Der Aufnahmebehälter **3** ist von einem Druckmantel **11** umgeben, welcher bei Reaktionen über etwa 30 bar unbedingt verwendet werden sollte. Der Druckmantel **11** besteht aus einem mikrowellen-durchlässigen Kunststoff, wie beispielsweise HTC.

Anstelle eines druckfesten Aufnahmebehälters **3** aus PTFE mit Druckmantel **11**, welcher maximale Arbeitsdrücke etwa zwischen 50 und 100 bar zuläßt, kann auch ein Aufnahmebehälter **3** aus Glas verwendet werden. Der Glas-Aufnahmebehälter **3** erlaubt nur Arbeitsdrücke bis etwa maximal 2,5 bar, hat aber den Vorteil, daß die in den Probenbehältern **8** ablaufenden chemischen Reaktionen beobachtet werden können.

Anhand von **Fig. 2** wird nun der Aufbau der erfindungsgemäßen Anordnung aus Aufnahmebehälter **3**, Flansch **5** und Kühlfinger **7** näher erläutert.

In dem mikrowellen-durchlässigen Aufnahmebehälter **3** befindet sich ein Gestell **13** aus mikrowellen-durchlässigem Material. Dieses Gestell **13** hat mittig einen hohlzylindrischen Schaft, der nahezu bis an das Deckelteil **4** des Aufnahmebehälters **3** reicht. Das Gestell **13** dient zur Aufnahme von einem oder mehreren Probenbehältern **8** für chemische Substanzen oder Proben **28**. Vorzugsweise finden bis zu acht Probenbehälter **8** in dem Gestell **13** Platz.

Die Probenbehälter **8** bestehen beispielsweise aus Glas, PTFE oder sonstigem mikrowellen-durchlässigem Material, das nicht druckfest zu sein braucht. Die Probenbehälter **8** werden oben jeweils mit einem Pfropfen **14** verschlossen. Die Pfropfen **14** sind druckdurchlässig, beispielsweise in Form eines zentralen Kanals im Pfropfen **14**. Die Pfropfen **14** der Probenbehälter **8** sollen einerseits einen Druckausgleich zwischen den Innenräumen der Probenbehälter **8** und dem Innenraum des Aufnahmebehälters **3** zulassen, andererseits aber einen Übertritt von chemischen Substanzen **28** in der Gasphase von einem Probenbehälter **8** in den anderen weitgehend ausschließen.

In den Probenbehältern **8** befinden sich die in einer Flüssigkeit gelösten oder suspendierten Proben **28**. Die Flüssig-

keit kann beispielsweise Säure sein, mit der bestimmte Substanzen unter hoher Temperatur und unter hohem Druck aufgeschlossen werden sollen. Es kann allgemein gesagt werden, daß in den Probenbehältern 8 chemische Reaktionen unter erhöhtem Druck und erhöhter Temperatur ablaufen sollen, wobei der Druck und die Temperatur die chemischen Reaktionen beschleunigen oder erst möglich machen.

In den hohlzylindrischen Schaft des Gestells 13 ragt von oben der Kühlfinger 7. Dieser besteht aus Metall, vorzugsweise Edelstahl, und ist innen hohl. Der Kühlfinger 7 weist an seinem oberen Ende eine Versorgungseinrichtung 15 auf und ist fest mit dem Metallflansch 5 verbunden. Die Versorgungseinrichtung 15 weist eine Zuleitung 17 und eine Ableitung 16 mit entsprechenden Ventilen 19 bzw. 18 für das Kühlmittel 34, 35 auf. Die Ableitung 16 ist mit einem Rohr 20 im Innern des Kühlfingers 7 verbunden, welches nahezu bis an den Boden des Kühlfingers 7 reicht und am unteren Ende offen ist, so daß das Kühlmittel 34, 35 am unteren Ende aus dem hohlen Kühlfinger 7 gepumpt werden kann. Zuleitung 17 und Ableitung 16 sind mit einem (nicht gezeigten) Kühlmittel-Pumpsystem verbunden, mit dem das Kühlmittel durch den Kühlfinger 7 gepumpt wird. Als Kühlmittel 34, 35 wird üblicherweise eine hochsiedende Kühlflüssigkeit 35 verwendet, es kann aber ebenso mit Gas 34 gekühlt werden.

Zentral durch den Kühlfinger 7 erstreckt sich ein Rohr 21 aus Metall, das am unteren Ende aus dem Kühlfinger 7 herausragt, wobei der Kühlfinger 7 so abgedichtet ist, daß weder die Flüssigkeit 9 in den Kühlfinger 7 eindringen noch das Kühlmittel 34, 35 aus dem Kühlfinger 7 herausströmen kann. Am Ende des geschlossenen Rohrs 21 befindet sich im inneren des Rohres ein (in Fig. 3 gezeigter) Thermofühler 32, beispielsweise ein Thermoelement, welcher eine von der an dieser Stelle vorherrschenden Temperatur abhängige Spannung erzeugt, die durch eine sich durch das Metallrohr 21 erstreckende Zuleitung nach oben weitergeleitet wird. Das Metallrohr 21 mündet am oberen Ende in die Versorgungseinrichtung 15, wo an einem Anschluß 22 die durch den Thermofühler 32 erzeugte Spannung abgegriffen werden kann, um die Spannung mit geeigneten Geräten in die entsprechende Temperatur umzurechnen bzw. einer Steuereinheit der Mikrowellenquelle zuzuführen.

Das in dem Aufnahmebehälter 3 angeordnete Gestell 13 läßt im unteren Bereich des Aufnahmebehälters 3 mittig einen Freiraum. In diesem Freiraum befindet sich ein frei um die vertikale Achse des Aufnahmebehälters 3 drehbares Rührelement 10. Das Rührelement 10 enthält einen Permanentmagneten 23 in Form eines Stabmagneten.

Dieser Stabmagnet 23 befindet sich in dem Magnetfeld einer Anordnung 12 aus einem oder mehreren zweiten Magneten, welche außerhalb des Aufnahmebehälters 3, vorzugsweise unterhalb des Bodens des Mikrowellengehäuses 1 angeordnet ist. Der Boden des Mikrowellengehäuses 1 besteht daher aus einem mikrowellen-undurchlässigen aber für Magnetkräfte durchlässigen, also nicht ferromagnetischen Metall, wie beispielsweise Kupfer, Aluminium oder Edelstahl, so daß das Magnetfeld hindurchtreten kann.

Bei den zweiten Magneten handelt es sich ebenfalls um Permanentmagnete in Form von Stabmagneten, welche kreisförmig um die nach unten verlängerte vertikale Mittelachse des Aufnahmebehälters 3 angeordnet sind. Die Permanentmagneten sind dabei senkrecht ausgerichtet mit einer abwechselnden Orientierung der Polung. Eine Drehung der Anordnung 12 der zweiten Magneten um die vertikale Mittelachse des Aufnahmebehälters 3 erzeugt eine Drehbewegung des Stabmagneten 23 im Aufnahmebehälter 3, da dessen Nord- und Südpol von den Nord- und Südpolen der zweiten Magnete abwechselnd angezogen und abgestoßen

werden.

Für ein funktionsfähiges Rührelement 10 eignen sich viele Ausgestaltungsformen. Wesentlich ist, daß das Rührelement 10 bei seiner Drehung um die vertikale Mittelachse des Aufnahmebehälters 3 zum einen die Flüssigkeit 9 zu rühren vermag und zum anderen im Aufnahmebehälter 3 eine Führung findet. Diese Führung wird durch das speziell ausgebildete Gestell 13 gebildet. Grundsätzlich eignet sich als Rührelement 10 ein üblicher Stabmagnet, der so lang bemessen ist, daß er beim Drehen im Unterteil des Gestells 13 nicht klemmt.

Eine bezüglich der Funktion Rühren vorteilhafte Form ist dann gegeben, wenn das Rührelement 10 die Form eines Kreuzes aufweist. Dabei ist der eine Kreuzbalken durch einen Stabmagneten 23 und der andere Kreuzbalken durch einen Rührstab oder ebenfalls durch einen Stabmagneten gebildet.

Vorteilhafterweise ist der Stabmagnet 23 von einem Schutzmantel, z. B. aus Quarz, Glas oder Kunststoff wie PTFE, umgeben. Soll das Rührelement zugleich für eine indirekte Erwärmung der zu rührenden Flüssigkeit 9 verwendet werden, so wird für den Schutzmantel ein mikrowellenabsorbierendes Material wie beispielsweise WEFLON verwendet. Bei WEFLON handelt es sich um PTFE mit eingelagerten Kohlenstoffpartikeln.

Zusätzlich zu dem einen Rührelement 10 im Aufnahmebehälter 3 können noch weitere Rührelemente 27 in den Probenbehältern 8 angeordnet sein. Diese sorgen für eine gleichmäßige Temperaturverteilung in den Proben 28 selbst. Aufbau und Funktionsweise entsprechen denjenigen des oben beschriebenen Rührelements 10. Die drehbare Anordnung 12 zweiter Magneten sorgt sowohl für den Antrieb des Rührelements 10 im Aufnahmebehälter 3 als auch für den Antrieb der Rührelemente 27 in den Probenbehältern 8.

Bei den Rührelementen 27 in den Probenbehältern 8 ist der Schutzmantel von besonderer Bedeutung. Um zu verhindern, daß insbesondere beim Vorhandensein von aggressiven Substanzen 28 kleinste Teilchen oder Moleküle aus dem Magnetmaterial bzw. Metall in das Probenmaterial 28 diffundieren, ist der Stabmagnet mit einer solchen Durchdringung verhindernden Hülle umgeben, die aus einem geeigneten Schutzmaterial, wie beispielsweise Quarz, Glas oder PTFE bestehen kann.

Durch die Verschlußvorrichtung des Aufnahmebehälters 3 aus Metallflansch 5 und Deckelteil 4 erstrecken sich mindestens zwei durchgehende Kanäle 24, über welche Druckgas in das Innere des Aufnahmebehälters 3 geleitet werden kann bzw. durch die das Druckgas wieder abströmen kann. Zu diesem Zweck sind die Kanäle 24 an ihren flanschseitigen Ausgängen jeweils mit einem (nicht gezeigten) Hochdruckventil versehen.

Mittels dieser Hochdruckventile kann der Aufnahmebehälter 3 vor dem Einsatz evakuiert und mit Inertgas oder Reaktionsgas gespült werden. Zudem kann der Druck in dem Aufnahmebehälter 3 und den Probenbehältern 8 jederzeit reguliert werden. Für eine solche Druckregulierung ist vorteilhafterweise ein (nicht gezeigter) Drucksensor zur Messung des Druckes in dem Aufnahmebehälter 3 vorgesehen.

Da die Probenbehälter 8 mit den Pfropfen 14 nicht druckfest verschlossen sind, herrscht in den Probenbehältern 8 der gleiche Druck wie in dem sie aufnehmenden, druckfest verschlossenen Aufnahmebehälter 3. Dadurch ist es möglich, daß die Probenbehälter 8 nicht druckfest sein müssen. Es können also beispielsweise einfache Reagenzgläser verwendet werden, die im Vergleich zu entsprechenden druckfesten Behältern wesentlich preisgünstiger sind.

In der erfindungsgemäßen Vorrichtung ist also nur ein äußerer druckfester Aufnahmebehälter 3 nötig. Das Deckelteil

4 dichtet innen den Kühlfinger 7 mit einer Dichtungsvorrichtung, beispielsweise durch zwei O-Ringe ab. Außen ist ebenfalls eine Dichtungsvorrichtung in Form eines Dichtungs rings zwischen dem Deckenteil 4 und dem Aufnahmebehälter 3 vorgesehen. Auf diese Weise wird gewährleistet, daß der Druck in dem Aufnahmebehälter 3 aufgebaut und aufrecht gehalten werden kann.

Im folgenden wird die Abfolge eines Arbeitsganges zur Behandlung der Proben beschrieben, bei dem die oben anhand der Fig. 1 und 2 beschriebene Vorrichtung eingesetzt wird. Zur Erläuterung des Arbeitsganges wird zudem auf Fig. 3 verwiesen.

Zunächst müssen die zu behandelnden Proben 28 in den Mikrowellenofen 1 eingebracht werden. Dazu wird das Gestell 13 in den Aufnahmebehälter 3 gestellt, in dem sich bereits das Rührelement 10 befindet. Anschließend werden die mit den Pfropfen 14 druckdurchlässig verschlossenen Probenbehälter 8 mit den darin befindlichen Proben 28 in die entsprechenden Standplätze des Gestells 13 gestellt. Dann wird in den Aufnahmebehälter 3 eine Flüssigkeit 9 eingefüllt bis zu einem Pegel, der oberhalb der chemischen Substanzen und unterhalb des oberen Randes der Probenbehälter 8 liegt. Die Flüssigkeit 9 ist vorzugsweise eine mikrowellen-absorbierende Flüssigkeit, d. h. sie erwärmt sich bei Bestrahlung durch Mikrowellen.

Es besteht ebenso die Möglichkeit, eine nicht mikrowellen-absorbierende Flüssigkeit 9 zu verwenden. In diesem Fall muß in dem Aufnahmebehälter 3 ein mikrowellen-absorbierendes Element vorhanden sein, welches durch die Mikrowellenbestrahlung erhitzt wird und die Wärme an die Flüssigkeit 9 abgibt. Wie oben bereits erwähnt, kann hierzu beispielsweise das Rührelement 10 verwendet werden, das mit einem mikrowellen-absorbierenden Schutzmantel versehen ist.

Nun wird der Aufnahmebehälter 3 mit der Verschlussvorrichtung aus Deckenteil 4 und Metallflansch 5 verbunden. Der am Flansch 5 angebrachte Kühlfinger 7 wird dabei durch die Öffnung in der Mitte des Deckelteils 4 geführt, und der Aufnahmebehälter 3 in die enge Führung 26 des Flansches 5 eingeführt bis er mit seiner umlaufenden Rastnase 25 hinter einem entsprechenden Vorsprung am Flansch 5 einrastet. Durch den Preßsitz zwischen Führung 26 und Aufnahmebehälter 3 wird die Dichtwirkung des Deckelteils 4 zusätzlich verstärkt.

Die Verschlussvorrichtung aus Metallflansch 5 und druckfestem Deckenteil 4 sollte allerdings für die Entnahme der Probenbehälter 8 leicht von dem Aufnahmebehälter 3 zu lösen sein. Dies ist insbesondere im Hinblick auf eine Automatisierung dieses Vorganges vorteilhaft.

Die Anordnung aus Verschlussvorrichtung 4, 5 und Aufnahmebehälter 3 wird nun durch die Öffnung 31 im Deckel des Mikrowellengehäuses 1 in den sich bereits in der Öffnung befindlichen Druckmantel 11 eingeschoben bis der Flansch 5 auf dem Deckel des Mikrowellengehäuses 1 aufliegt und somit zusammen mit dem Metallgehäuse 1 des Mikrowellenofens einen mikrowellen-undurchlässigen Faradayschen Käfig bildet. Jetzt wird der Flansch mit zwölf Schrauben 6 mit dem Mikrowellengehäuse 1 verschraubt.

Um die relativ aufwendige Verschraubung des Flansches 5 mit den zwölf Schrauben 6 zu vermeiden, ist eine alternative Verschluss- und Befestigungsmöglichkeit denkbar. Die Führung 26, welche in die Öffnung 31 in der Decke des Mikrowellengehäuses 1 eingeführt ist, kann so ausgebildet sein, daß sie sich oberhalb der Decke des Mikrowellengehäuses 1 in Gestalt eines Randes so weit nach oben erstreckt, daß sie eine Aufnahme für den Metallflansch 5 bildet. Seitlich befinden sich sowohl in der Führung 26 als auch im Flansch 5 zwei bis drei Bohrungen. In diese Bohrungen wer-

den zum Befestigen des Flansches 5 Bolzen eingeführt.

Um dem Benutzer die richtige Positionierung des Flansches 5 in der Führung 26 zu erleichtern, können entsprechende Markierungen oder Positionierelemente an Flansch 5 und/oder Führung 26 vorgesehen sein. Das Einführen weniger Bolzen ist in jedem Fall einfacher und schneller auszuführen als eine Verschraubung mit mehreren Schrauben 6. Die Anzahl der Schrauben 6 kann auch nicht reduziert werden, da sie den hohen, in dem Aufnahmebehälter 3 vorherrschenden Drücken standhalten müssen. Durch eine entsprechend ausgewählte Stärke der Bolzen kann diese Festigkeit schon durch eine relativ geringe Anzahl von zwei oder drei Bolzen erreicht werden.

Zu Beginn des Prozesses wird nun durch die Druckkanäle 24 Druckgas in den Aufnahmebehälter 3 eingeleitet, wobei sich der Druck durch die druckdurchlässigen Pfropfen 14 in die Probenbehälter 8 fortsetzt. Durch den Vordruck von etwa 10 bis 20 bar wird der Siedepunkt der in dem Aufnahmebehälter 3 befindlichen Flüssigkeit sowie der Siedepunkt der in den Probenbehältern 8 befindlichen chemischen Substanzen 28 erhöht. Bei dem Druckgas kann es sich um Luft, Inertgas oder auch ein Reaktionsgas handeln.

Durch den erhöhten Siedepunkt geht beim Erhitzen der Flüssigkeit 9 und der Proben 28 durch die Bestrahlung mit Mikrowellen weniger Flüssigkeit in die Dampfphase über, in der nahezu keine Mikrowellenabsorption möglich ist. Das bedeutet, daß die Grundlast für die Mikrowellenbestrahlung, d. h. die Menge mikrowellen-absorbierender Materie etwa konstant bleibt. Durch den erhöhten Druck und den dadurch erzielten erhöhten Siedepunkt kann demnach die chemische Reaktion bei höheren Temperaturen ablaufen.

Die Tatsache, daß in allen Probenbehältern 8 sowie im Aufnahmebehälter 3 der gleiche Druck herrscht, hat den Vorteil, daß sich die Proben 28 in den einzelnen Probenbehältern 8 nicht gegenseitig beeinflussen können, obwohl die Probenbehälter nicht druckfest verschlossen sind. Durch eine geeignete Ausgestaltung der Pfropfen 14 können nahezu keine Verunreinigungen auftreten, indem die chemischen Substanzen 28 aus dem einen Probenbehälter 8 über die Gasphase in einen anderen Probenbehälter 8 gelangen, d. h. es gibt nahezu keine Verschleppungsfehler.

Durch diese Maßnahme ist es beispielsweise möglich, in den Probenbehältern 8 verschiedene Proben 28 (z. B. verschiedene chemische Substanzen oder verschiedene Konzentrationen) gleichzeitig in einem Arbeitsgang zu behandeln, ohne daß die Gefahr einer gegenseitigen Verunreinigung der Proben 28 besteht.

Der Kühlfinger 7 liegt auf dem gleichen elektrischen Potential wie das Mikrowellengehäuse 1, weil er selbst aus Metall besteht und über den Metallflansch 5 und die Verschraubung 6 elektrisch mit dem Gehäuse 1 des Mikrowellenofens verbunden ist. Die seitlich einstrahlende Mikrowelle wird daher an dem Kühlfinger 7 reflektiert und passiert zweimal die Proben 28 bzw. die Flüssigkeit 9, so daß auf diese Weise die Erhitzung durch Mikrowellenbestrahlung gefördert wird.

Vor Beginn des Heizvorganges wird der Kühlfinger 7 durch die Leitungen 16 und 17, beispielsweise mittels Druckgas 34, leer gepumpt, d. h. eine evt. vorhandene Kühlflüssigkeit 35 aus dem Innenraum des Kühlfingers 7 entfernt. Dadurch ist die Wärmekapazität des Kühlfingers 7 und somit der gesamten Anordnung im Aufnahmebehälter 3 stark reduziert und die Erhitzung der Flüssigkeit 9 bzw. der Proben 28 in den Probenbehältern 8 geht schneller vor sich.

Vorteilhafterweise wird der Kühlfinger 7 vor und während des Heizvorganges mit einem Gas 34 gespült. Die Spülung kann dabei durch Druck oder Unterdruck vorgenommen werden. Zum Abkühlen, d. h. im allgemeinen nach dem

Heizvorgang, wird der Kühlfinger 7 zunächst mit einem höheren Gasstrom 34 aus der Kühlmittelzuleitung 17 vorgekühlt. Hierdurch werden insbesondere bei sehr hohen Temperaturunterschieden Druckbelastungen im Inneren des Kühlfingers 7 durch extreme Dampfbildung vermieden oder zumindest deutlich reduziert. Anschließend wird der Kühlfinger 7 mit einer hochsiedenden Kühlflüssigkeit 35 abgekühlt, um die Proben 28 schneller entnehmen zu können.

Wie in Fig. 3 gezeigt, kann die Umschaltung zwischen Gasstrom 34 und Kühlflüssigkeit 35 automatisch durch eine Umschaltvorrichtung 33 vorgenommen werden. Als Umschaltvorrichtung 33 sind beispielsweise eine Anordnung aus mehreren Ventilen oder ein Dreiwege-Ventil denkbar. Die Ventile bzw. das Dreiwege-Ventil werden dabei von einer Elektronik, beispielsweise mittels PC, kontrolliert und gesteuert.

Dadurch daß der Kühlfinger 7 vor und während des Heizvorganges mit Gas 34 gespült wird, wird der Wärmegradient zwischen dem Inneren des Kühlfingers 7 und der Flüssigkeit 9 deutlich verringert. Durch diese Maßnahme sind somit genauere Temperaturmessung möglich, da Meßfehler des Thermofühlers 32 verringert werden.

Während der Behandlung der chemischen Substanzen 28 wird die Flüssigkeit 9 im Aufnahmebehälter 3 durch das Rührelement 10 gerührt, damit eine gleichmäßige Temperaturverteilung in der gesamten Flüssigkeit 9 vorherrscht. Dadurch werden auch die Probenbehälter 8 mit den darin befindlichen Proben 28 gleichmäßig erwärmt. Evt. werden zusätzlich die Proben 28 in den Probenbehältern 8 mittels der Rührelemente 27 gerührt, um die gleichmäßige Temperaturverteilung in den Proben 28 weiter zu fördern.

Je nach Art der zu behandelnden Proben 28, werden diese direkt oder indirekt durch die Bestrahlung mit Mikrowellen erhitzt. Gleiches gilt für die Flüssigkeit 9, die ihrerseits die Probenbehälter 8 erwärmt.

Das schnelle Abkühlen nach erfolgter chemischer Reaktion ermöglicht einen hohen Durchsatz von Proben durch das Gerät. Ein hoher Durchsatz bedeutet eine hohe Arbeitsgeschwindigkeit, d. h. Zeitersparnis und damit auch Kostenersparnis.

Patentansprüche

1. Vorrichtung zum Behandeln chemischer Substanzen durch Erhitzen unter Druck, mit
 - einem mikrowellen-undurchlässigen Gehäuse (1),
 - einer mit dem Innenraum (2) des Gehäuses (1) verbundenen Mikrowellenquelle (29), und
 - mindestens einem zur Aufnahme der chemischen Substanzen oder Proben (28) dienenden Probenbehälter (8),
 dadurch gekennzeichnet, daß der oder die Probenbehälter (8) druckdurchlässig verschließbar ist/sind, und daß der oder die Probenbehälter (8) in einem druckfest verschließbaren Aufnahmebehälter (3) aus mikrowellen-durchlässigem Material angeordnet ist/sind.
2. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Aufnahmebehälter (3) von oben durch eine Öffnung (31) in der Decke des Gehäuses (1) in das Gehäuse (1) eingeführt und mittels einer Verschlussvorrichtung (4, 5) an der Decke des Gehäuses (1) befestigt wird, wobei die Verschlussvorrichtung (4, 5) ein metallisches Deckelteil (5) zur Befestigung am Gehäuse (1) und zur Mikrowellen-Abdichtung der Öffnung (31) und ein Deckelteil (4) zum druckfesten Ver-

schließen des Aufnahmebehälters (3) aufweist.

3. Vorrichtung nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Deckelteil (5) und das Deckelteil (4) eine Einheit bilden, die leicht von dem Aufnahmebehälter (3) entfernbar ist.

4. Vorrichtung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Vorrichtung weiter einen Kühlfinger (7) zur Kühlung der in den Probenbehältern (8) befindlichen Proben (28) aufweist, der in den Aufnahmebehälter (3) hineinragt und in thermischem Kontakt mit den Probenbehältern (8) steht.

5. Vorrichtung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß der Kühlfinger (7) eine Zuleitung (17) und eine Ableitung (16) für ein Kühlmittel (34, 35) aufweist, wobei die Zuleitung (17) mit einer Umschaltvorrichtung (33) zur Umschaltung zwischen verschiedenen Kühlmitteln (34, 35) ausgestattet ist.

6. Vorrichtung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Vorrichtung weiter ein magnetisches Rührelement (10) im Aufnahmebehälter (3) aufweist.

7. Vorrichtung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der oder die Probenbehälter (8) jeweils ein magnetisches Rührelement (27) aufweist bzw. aufweisen.

8. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 4 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß der Kühlfinger (7) metallisch ist und mit dem Gehäuse (1) des Mikrowellenofens in metallischem Kontakt steht, so daß er auf dem gleichen elektrischen Potential liegt wie das Gehäuse (1) des Mikrowellenofens.

9. Vorrichtung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Vorrichtung weiter einen Thermosensor zur Messung der Temperatur im Aufnahmebehälter (3) aufweist.

10. Vorrichtung nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß die Zuleitungsdrähte des Thermosensors in einem metallischen Rohr (21) aus dem Gehäuse (1) des Mikrowellenofens herausgeführt sind, welches mit dem Gehäuse (1) des Mikrowellenofens in metallischem Kontakt steht, so daß es auf dem gleichen elektrischen Potential liegt wie das Gehäuse (1) des Mikrowellenofens.

11. Vorrichtung nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß das Rohr (21) im Innern des Kühlfingers (7) angeordnet ist und am unteren Ende des Kühlfingers (7) aus diesem herausragt.

12. Vorrichtung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß in dem Aufnahmebehälter (3) ein Gestell (13) mit Standplätzen für die Probenbehälter (8) vorgesehen ist.

13. Verfahren zum Behandeln chemischer Substanzen durch Erhitzen in einer Vorrichtung mit

- einem mikrowellen-undurchlässigen Gehäuse (1),
- einer mit dem Innenraum (2) des Gehäuses (1) verbundenen Mikrowellenquelle (29),
- mindestens einem verschließbaren und zur Aufnahme einer chemischen Substanz bzw. Probe (28) dienenden Probenbehälter (8) aus mikrowellen-durchlässigem Material, und
- einem Kühlfinger (7) zur Kühlung der in dem Probenbehälter oder den Probenbehältern (8) befindlichen Probe bzw. Proben (28), der in thermischem Kontakt mit dem Probenbehälter oder den Probenbehältern (8) steht, und insbesondere in einer Vorrichtung nach einem der vorhergehenden

Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet, daß der Kühlfinger (7)
vor dem Erhitzen der Probe bzw. der Proben (28)
entleert, d. h. ein evt. in dem Kühlfinger (7) vor-
handenes Kühlmittel (35) entfernt wird, um die 5
Wärmekapazität der Anordnung zu verringern,
und daß nach erfolgter Reaktion in dem Probenbe-
hälter bzw. den Probenbehältern (8) ein Kühlmit-
tel (34, 35) in bzw. durch den Kühlfinger (7) geleit-
et wird, um die Probe bzw. Proben (28) schnell 10
abzukühlen.

14. Verfahren nach Anspruch 13, dadurch gekenn-
zeichnet, daß der Kühlfinger (7) vor und während des
Heizvorganges mit Mikrowellenbestrahlung mit einem
Gas (34) gespült wird. 15

15. Verfahren nach Anspruch 13 oder 14, dadurch ge-
kennzeichnet, daß der Kühlfinger (7) zum Abkühlen
zunächst mit einem höheren Gasstrom (34) vorgekühlt
und anschließend mit einer hochsiedenden Kühlflüs-
sigkeit (35) abgekühlt wird. 20

16. Verfahren nach einem der Ansprüche 13 bis 15,
dadurch gekennzeichnet, daß die Probenbehälter (8)
vor der Erhitzung der darin befindlichen Proben (28)
mit Druck beaufschlagt werden, um den Siedepunkt
der chemischen Substanzen (28) in den Probenbehäl- 25
tern (8) zu erhöhen.

17. Verfahren nach einem der Ansprüche 13 bis 16,
dadurch gekennzeichnet, daß die Probenbehälter (8)
mit den darin befindlichen Proben (28) indirekt über
eine Flüssigkeit (9) erwärmt werden, welche sich in 30
dem Aufnahmebehälter (3) befindet, die Probenbehäl-
ter (8) etwa bis zum Pegel der darin enthaltenen Proben
(28) umgibt und direkt oder indirekt durch Bestrahlung
mit Mikrowellen erhitzt wird.

18. Verfahren nach Anspruch 17, dadurch gekenn- 35
zeichnet, daß die Flüssigkeit (9) zum Zwecke einer
gleichmäßigen Temperaturverteilung durch Rühren ge-
mischt wird.

19. Verfahren nach einem der Ansprüche 13 bis 18,
dadurch gekennzeichnet, daß die chemischen Substan- 40
zen (28) in den Probenbehältern (8) zum Zwecke einer
gleichmäßigen Temperaturverteilung jeweils durch
Rühren gemischt werden.

Hierzu 3 Seite(n) Zeichnungen

45

50

55

60

65

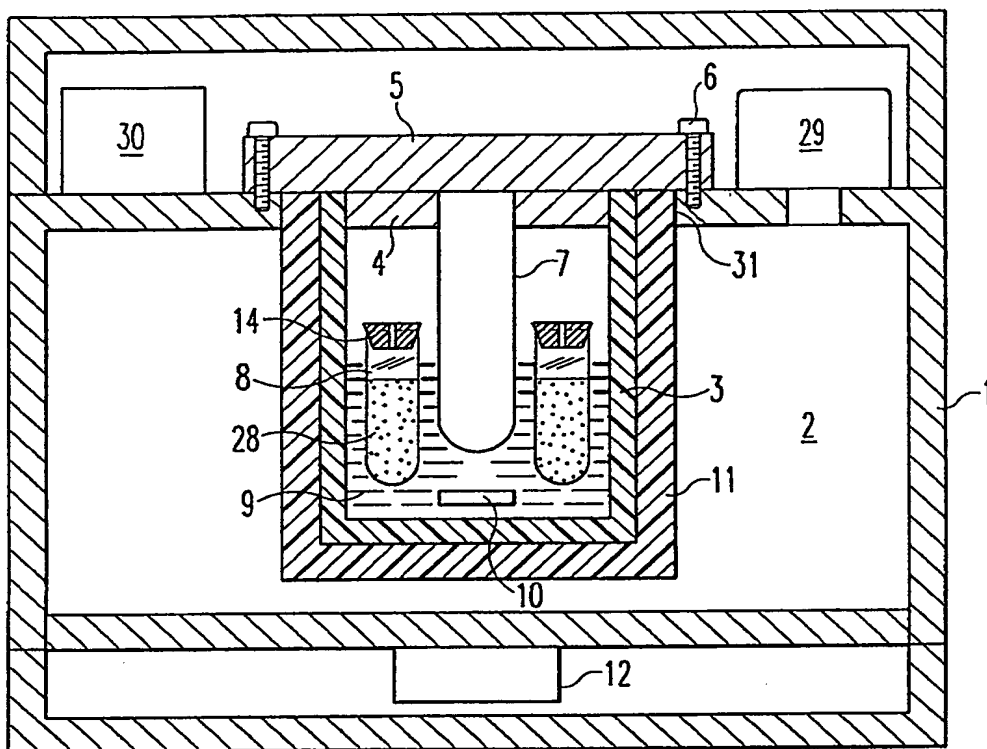


Fig. 1

Fig. 2

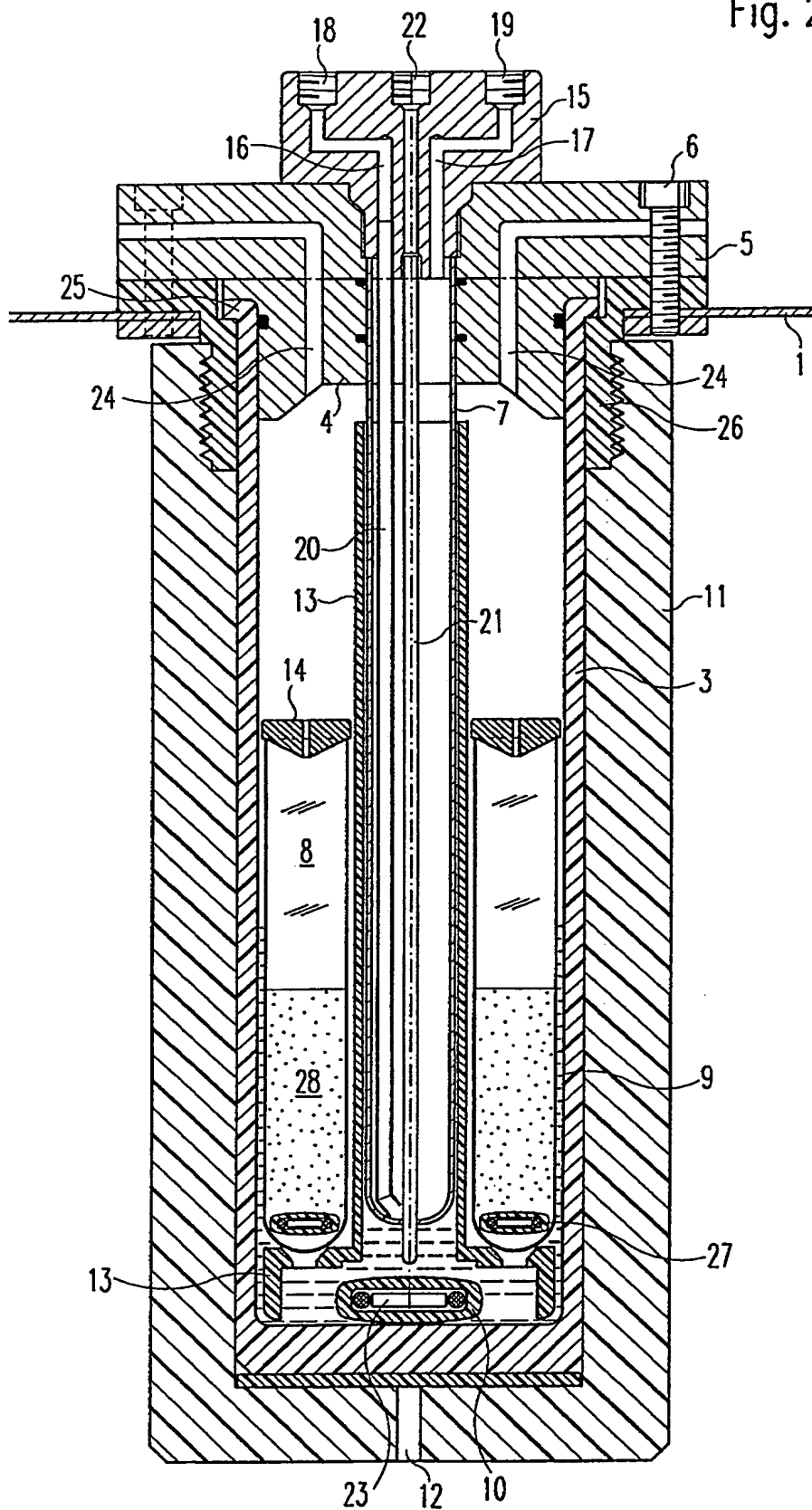


Fig. 3

